

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-148048

⑬ Int. Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和61年(1986)7月5日

B 32 B 17/10
// B 32 B 33/00

6122-4F
6122-4F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

⑮ 発明の名称 フォトクロミック積層体

⑯ 特 願 昭59-275628

⑰ 出 願 昭59(1984)12月24日

⑱ 発 明 者 細 田 雅 弘 宇治市宇治里尻32
⑱ 発 明 者 渡 辺 康 光 京都市伏見区醍醐京道町3-27
⑱ 発 明 者 垣 下 智 成 城陽市寺田大谷26番地77
⑲ 出 願 人 ユニチカ株式会社 尼崎市東本町1丁目50番地

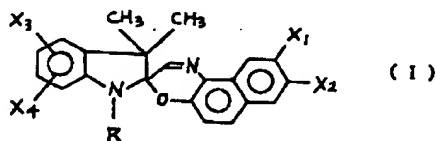
明 細 書

1. 発明の名称

フォトクロミック積層体

2. 特許請求の範囲

(1) 透明性樹脂に下記一般式(1)で示されるスピロナフトオキサジン誘導体を含有させてなるフォトクロミック層と、透明性材料層とが一体化してなり、かつ該フォトクロミック層が透明性材料層間に介在してなるフォトクロミック積層体。



(式中、Rは低級アルキル基、X₁、X₂は水素原子、水酸基、低級アルコキシ基又はハロゲン原子、X₃、X₄は水素原子、低級アルキル基、

低級アルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基又はシアノ基を表す。)

(2) 透明性材料層が無機ガラス板である特許請求の範囲第1項記載の積層体。

(3) 透明性材料層が有機プラスチック材料層である特許請求の範囲第1項記載の積層体。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、光照射により吸収スペクトルが可逆的に変化する現象、すなわちフォトクロミズムを示す積層体に関するものであり、さらに詳しくはフォトクロミック物質としてスピロナフトオキサジン誘導体を含有し、感度が高く、戻り速度が速く、かつ繰り返し寿命が長いフォトクロミック積層体に関するものである。

(従来の技術)、(発明が解決しようとする問題点)

従来から、有機フォトクロミック物質を適当な透明性樹脂に溶解せしめた組成物を日光遮断材料あるいは装饰材料に応用することは提案されている。しかし、たとえばベンゾスピロピラン類、ト

リフェニルメタン類、ジチゾン類あるいはビオロゲン類などの有機フォトクロミック物質を用いた組成物は、繰り返し寿命、発色感度あるいは暗所における戻り速度といったフォトクロミック材料に要求される性能のなかで、発色感度は良好であるが、繰り返し寿命及び暗所における戻り速度といった点で満足できるものではなく、現在実用化されていない。

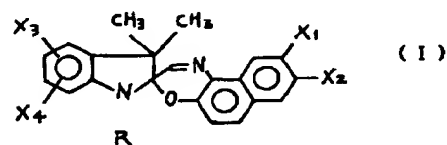
また、特公昭45-28892号公報や特開昭55-36284号公報にはスピロナフトオキサジン誘導体を含む組成物が記載されているが、これらは発色感度が高い、暗所における戻り速度が早いといった特長を有しているが、紫外光に対し徐々に応答しなくなるなど繰り返し寿命に実用上問題がある。

「問題を解決するための手段」

本発明者らは、かかる状況に鑑み、繰り返し寿命、発色感度及び暗所における戻り速度といった要求性能を十分に満足したフォトクロミック材料を提供することを目的として種々検討を重ねた結果、透明性樹脂とスピロナフトオキサジン誘導体

とからなるフォトクロミック層を、透明性材料層間に介在させ、一体化することにより、繰り返し寿命が一段と優れたフォトクロミック積層体を得られることを見出し、本発明に到達した。

すなわち、本発明は透明性樹脂に下記一般式(1)で示されるスピロナフトオキサジン誘導体を含有させてなるフォトクロミック層と、透明性材料層とが一体化してなり、かつ該フォトクロミック層が透明性材料層間に介在してなるフォトクロミック積層体である。



(式中、Rは低級アルキル基、X₁、X₂は水素原子、水酸基、低級アルコキシ基又はハロゲン原子、X₃、X₄は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基又はシアン基を表す。)

本発明の積層体は、前記スピロナフトオキサジン誘導体を含有させたフォトクロミック組成物の発色感度が高い、暗所における戻り速度が速いといった特長を保持したまま、繰り返し寿命が著しく向上し、実用価値が飛躍的に増大した。

以下、本発明を図面を用いて説明する。

第1図は、本発明の積層体の最も基本的な実施態様を示す断面図である。透明性材料層1の上にスピロナフトオキサジン誘導体を含有したフォトクロミック層2及び透明性材料層1を順次積層し、一体化することによりフォトクロミック積層体が形成される。

本発明の積層体を構成する透明性材料層1としては、無機ガラス板が好ましく用いられるが、透明であれば有機プラスチック材料からなるフィルム、シート状物あるいはコーティング膜も適用可能である。いずれの材料も全光線透過率が65%以上のものが好ましい。透明性材料層1の厚みは、酸素ガスバリアー性を発現させるうえで0.1μ以上、とくに15μ以上であることが好ましい。透明

性材料層1が優れた酸素バリアー性能を有する場合、その厚みは0.1μ以上で十分であるが、積層体の製造の容易さからみれば、無機ガラス板の場合は0.1~10mm、有機プラスチック材料からなるフィルムやシートの場合は2μ~10mm、コーティング膜の場合は0.1~30μであることが好ましい。本発明において好ましく用いられる有機プラスチック材料としては、例えばナイロン6、ナイロン66、ナイロン4,6、ナイロン11、ナイロン12、ポリエチレンテレフタレート、アセチルセルロース、トリアセチルセルロース、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリ弗化ビニリデン、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリウレタン、ポリアリルグリコールカーボネート、ポリ酢酸ビニル、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリスチレン等があげられ、また優れた酸素ガスバリアー性能を有する材料としては例えば無機ガラス、ナイロン6、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリビニ

ルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリ弗化ビニリデン、ポリ三弗化エチレン等があげられる。

積層体を構成するフォトクロミック層2は、透明性樹脂に前記一般式(1)で示されるスピロナフトオキサジン誘導体を含有させたものであるが、誘導体の含有量が0.1~80重量%であって、厚みが均一で、かつ1mm以下、とくに2~20μmの範囲のものであることが好ましい。フォトクロミック層を構成する透明性樹脂としては、フォトクロミック層形成時の可視光線透過率が550nmにおいて60%以上を保持するものが好ましく用いられる。そのような透明性樹脂としては、例えばポリメチルメタアクリレートのようなアクリル系ポリマー、ポリスチレンのようなスチレン系ポリマー、ポリカーボネートのようなポリエステル系ポリマー、ポリエチレンオキシドのようなポリエーテル系ポリマー、ナイロン6のようなポリアミド系ポリマー、ポリエチレンのようなオレフィン系ポリマー、エチルセルロースのようなセルロース系ポリマー、

ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリグリシジルメタアクリレート、ポリウレタン、ポリ-N-ビニルカルバゾールとこれらの共重合体及びそれらの混合物をあげることができ、またそれらは必要に応じて架橋されたものであってもよい。フォトクロミック層2は、例えば透明性樹脂と前記スピロナフトオキサジン誘導体をロールミル等に加えて混和し、ついでプレス機等を用いてシート化するかあるいは透明性樹脂と前記スピロナフトオキサジン誘導体を適当な有機溶剤に溶解させ、その溶液を水平のとれた位置でガラス板等に塗布、乾燥させるか、あるいは透明性樹脂のシート状物を得た後、このものに染色法により前記スピロナフトオキサジン誘導体を含有させることにより作成することができる。

本発明の積層体を製造するには、一般的にはフォトクロミック層2を2枚の透明性材料層1の間に挟み込み、フォトクロミック層2の透明性樹脂が軟化する温度まで徐々に加熱するとともに、透

明性材料1間に圧力をかけてフォトクロミック層2と透明性材料層1との間にある空気を完全に脱気してフォトクロミック層2と透明性材料層1の接合を行えばよい。また、本発明の積層体は、フォトクロミック層2の両面に透明性材料を溶媒に分散させるか、あるいは溶解させた分散液又は溶液を塗布、乾燥させることによっても製造することができる。本発明の積層体において、透明性材料層1は同じものであってもよいし、例えば片面が無機ガラス板やフィルムやシート状物であって、残りの片面がコーティング膜であるなど異なったものであってもよい。透明性材料層1とフォトクロミック層2との接合が不十分なため、積層体を形成した後はがれたり、湿気が入るような場合には、透明性材料層1及び透明性樹脂との接着性が優れた樹脂を用いて透明性材料層1とフォトクロミック層2の間に接着層を形成し、接着性の改良を行うこともできる。また、本発明のフォトクロミック積層体を連続工程化により製造するには、例えばまず機械的強度と可視性を有した透明な支

持体フィルム、好ましくはポリエチレンテレフタレート、二軸延伸フィルムやナイロン6の二軸延伸フィルムの片面あるいは両面に透明性樹脂と前記スピロナフトオキサジン誘導体からなるフォトクロミック層2を形成し、ついでこのフィルムの両面に必要に応じて接着層を介して透明性材料層1を積層し、加熱、加圧処理すればよい。このようにして得られた本発明の実施態様を第2図~第5図に示す。第2図は、透明性材料層1とフォトクロミック層2の間に接着層3を設け、接着層3を介して透明性材料層1を積層した積層体の断面図である。第3図は、透明な支持体フィルムの両面にフォトクロミック層2を形成させ、これに透明性材料層1を積層した積層体の断面図である。第4図、第5図は、透明な支持体フィルム4の片面あるいは両面にフォトクロミック層2を形成させ、さらにその上に接着層3を介して透明性材料層1を積層した積層体の断面図である。

(実施例)

以下に本発明をさらに具体的に説明するため、

実施例をあげる。

実施例1～8、比較例1～8

1.3.3 トリメチルスビロ〔インドリン-2,3'-〔3H〕-ナフト〔2,1-b〕-1,4-オキサジン〕をポリビニルアルコール（ユニチカケミカル、UMR-80L）、ポリビニルブチラール、フェノキシ樹脂（ユニオンカーバイド社製、PKKH）、エチレン-酢酸ビニル共重合体（武田薬品工業、SD-181）のポリマーに対しそれぞれ10重量%になるように含有させ、ついでそれらから厚みが約20μのフィルムを得た。このフィルムを厚さ1mmのガラス板（200mm×50mm）で挟んだ後、加熱真空乾燥機にて圧力100mmHg、温度90℃で30分間保持し、ついでオートクレーブ中で加熱し、圧力10kg/cm²、温度110℃にて20分間保持した。次に冷却、放圧して積層体を得た。得られた積層体はいずれも無色透明で、あわ、しわ、くもりなどがなく、全面が均一な透視性を示した。

この積層体を超高圧水銀燈（牛尾電機社製 USH-500D）500W を光源として、カットフィルターUV

を行った。接合の方法は前述実験とほぼ同様であるが、圧力12 kg/cm²、温度120℃にて20分間加熱圧着を行い、積層体を得た。得られた積層体はいずれも無色透明で、あわ、しわ、くもりなど全くなく、全面が均一な透明性を示した。これら積層体についても繰り返し反復性試験を行った。

また、比較のため接着層のない積層体についても同じ実験を行った。その測定結果も表1に示す。

以上の実験結果により、本発明のフォトクロミック積層体は、従来のフォトクロミック組成物と比べて繰り返し寿命において著しく向上したことが理解できる。

実施例9、比較例9

熱硬化型ポリウレタン樹脂（大日本インキ化学工業、クリスボンNT-150）に1.3.3 トリメチルスビロ〔インドリン-2,3'-〔3H〕-ナフト〔2,1-b〕-1,4-オキサジン〕を20重量%になるように溶解した。この溶液を厚みが37μのナイロン6二軸延伸フィルム（ユニチカ製）の片面に厚みが5μにあるようバーコーティング法を用いて塗

-29（東芝硝子社製）を用い、30秒間光照射を行った。その際、飽和光学濃度の測定は発色した際の吸収極大波長λ_{max} 613nmで行った。次に、繰り返し反復性試験を30秒間光照射の後、30秒間暗所放置を1サイクルとして1万サイクル行った。結果を表1に示す。ここで、発色保持率とは次式で定義されるものである。

$$\text{発色保持率(\%)} = \frac{1 \text{ 万サイクル後の光照射による飽和光学濃度}}{\text{初期の光照射による飽和光学濃度}} \times 100$$

また、比較のため、ガラス板で積層していないフィルムについても同じ実験を行った。その測定結果も表1に示す。

次に、ポリマーとしてポリエステル（東洋紡、バイロン200）、ポリカーボネート（三菱瓦斯化学、52000F）、ポリメチルメタアクリレート（石津製薬、試薬グレード）、ポリスチレン（電気化学、GP-1）を用いて前述の実験と同様にして積層体の作成を試みたが、ガラス板との接着が不良で、接合後にはがれた。そのため、接着層としてポリビニルブチラールの0.38mmのシートを用いて接着性の改良

布した後、120℃で2分間熱硬化させた。ついで上記ポリウレタン樹脂層の上にポリ塩化ビニリデン（旭化成、サララテックス）を厚みが2μになるように塗布、乾燥してコーティング膜を形成し、積層体を得た。得られた積層体は無色透明であわ、しわ、くもりなどなく、全面が均一な透視性を示した。このものについて実施例1と同様の繰り返し反復性試験を行ったその結果を表2に示す。

比較のため、ポリ塩化ビニリデン層を積層しなかった積層体の測定結果を併せて表2に示すが、フォトクロミック層の両面を透明性材料層で積層することにより繰り返し寿命が著しく延びたことは明らかである。

実施例10

ガラス板の代わりにポリアリルジグリコールカーボネート樹脂（PPG社、CR-39）の厚さ2mmのシート状物を用いた以外は実施例1と同様にして積層体を作成した。ただし、積層の際にポリアリルジグリコールカーボネートの熱変形によるひずみ

が起きないように加熱温度を90℃に低下させて行った。作成した積層体は無色透明であわ、しわ、くもりなどなく、全面が均一な透視性を示した。この積層体を用い、実施例1と同様の繰り返し反復性試験を行った。その結果を表2に示すが、フォトクロミック層の両面を透明性材料層で積層することにより繰り返し寿命が著しく延びたことは明らかである。

表 1 (つづき)

	フォトクロミック層の透明性樹脂	接着層の有無	光照射前の全光透過率 (%)	暗所における戻り速度 (秒)	初期の飽和光学濃度	色発保持率 (%)
実施例5	ポリエスチル	有	93	45	0.78	83
比較例5		無	93	40	0.79	17
実施例6	ポリカーボネート	有	84	110	0.68	98
比較例6		無	90	120	0.73	68
実施例7	ポリメチルメタクリレート	有	89	20	0.57	100
比較例7		無	81	25	0.57	75
実施例8	ポリスチレン	有	92	75	0.88	97
比較例8		無	83	80	0.93	72

表 2

	フォトクロミック層の透明性樹脂	材料層	光照射前の全光透過率 (%)	暗所における戻り速度 (秒)	初期の飽和光学濃度	色発保持率 (%)
実施例9	熱硬化型ポリウレタン	ナロゲル(3μ)	83	20	0.73	98
比較例9		ナロゲル(2μ)	81	20	0.74	32

表 3

	フォトクロミック層の透明性樹脂	材料層	光照射前の全光透過率 (%)	暗所における戻り速度 (秒)	初期の飽和光学濃度	色発保持率 (%)
実施例1	ポリビニルアルコール	ガラス板 (1mm)	88	90	0.83	98
実施例10		CR-39板 (2mm)	83	90	0.79	95
比較例1		なし	85	90	0.87	47

表 1

	フォトクロミック層の透明性樹脂	接着層の有無	光照射前の全光透過率 (%)	暗所における戻り速度 (秒)	初期の飽和光学濃度	色発保持率 (%)
実施例1	ポリビニルアルコール	無	88	70	0.83	98
比較例1		無	85	70	0.87	47
実施例2	ポリビニルブチラール	無	93	20	0.91	97
比較例2		無	85	20	0.99	27
実施例3	フェノキシ樹脂	無	92	60	0.72	98
比較例3		無	90	60	0.78	95
実施例4	エチレン-酢酸ビニル共重合体	無	88	30	0.61	82
比較例4		無	87	30	0.64	11

(発明の効果)

本発明のフォトクロミック積層体は、従来のフォトクロミック組成物の発色感度、戻り速度の低下を引き起こすことなく、繰り返し寿命を飛躍的に増大させることができる。現在、実用までに到っていない有機フォトクロミック材料の商品化を実現させるものである。

本発明の積層体は建築物、自動車、電車、飛行機などの窓あるいは計器パネル、ショーケース、眼鏡レンズなどに日光遮断材料として用いられるだけでなく、ディスプレイ材料、光量計、光学フィルター、装飾などの材料として利用できる。

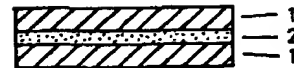
4. 図面の簡単な説明

第1図～第5図は、本発明に基づくフォトクロミック積層体の断面図を示す。

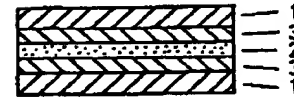
1…透明性材料層、2…フォトクロミック層、3…接着層、4…透明支持体フィルム

特許出願人 ユニチカ株式会社

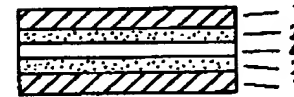
第1図



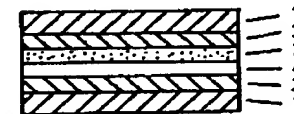
第2図



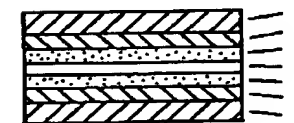
第3図



第4図



第5図



平成 4. 4. 14 発行

手 続 補 正

平成 3 年 1 2 月 1 2 日

特許法第 1 7 条の 2 の規定による補正の掲載

昭和 5 9 年特許願第 2 7 5 6 2 8 号(特開昭
6 1 - 1 4 8 0 4 8 号, 昭和 6 1 年 7 月 5 日
発行 公開特許公報 6 1 - 1 4 8 1 号掲載)につ
いては特許法第 1 7 条の 2 の規定による補正があっ
たので下記のとおり掲載する。 2 (4)

Int. Cl. 5	識別 記号	庁内整理番号
B 3 2 8 1 7 / 1 0		7 1 4 8 - 4 F
// B 3 2 8 3 3 / 0 0		7 1 4 1 - 4 F

特 許 庁 長 官 殿

1. 事件の表示

特願昭 5 9 - 2 7 5 6 2 8 号

2. 発明の名称

フォトクロミック積層体

3. 補正をする者

事件との関係 特 許 出 願 人

住 所 兵庫県尼崎市東本町 1 丁目 5 0 番地

名 称 (4 5 0) ユ ニ チ カ 株 式 会 社

代 表 者 田 口 圭 太

連 絡 先

〒 5 4 1

住 所 大阪市中央区久太郎町四丁目 1 番 3 号

名 称 ユ ニ チ カ 株 式 会 社 特 許 部

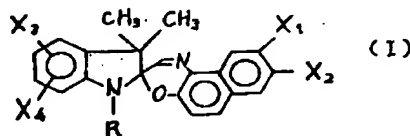
電話 0 6 - 2 8 1 - 5 2 5 8 (ダイヤルイン)

4. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明」の欄

5. 補正の内容

- (1) 明細書第 3 頁第 2 0 行「スピロナフトオキサジン」
を「スピロナフトオキサジン」と訂正する。
(2) 同書第 4 頁の一般式 (I) を次のように訂正する。



- (3) 同書第 6 頁第 9 行「ナイロン 4, 6」を「ナイロン
4 6」と訂正する。
(4) 同書第 8 頁第 8 行「スピロナフトオキサジン」を
「スピロナフトオキサジン」と訂正する。
(5) 同書第 8 頁第 1 5 行「スピロナフトミキサジン」を
「スピロナフトオキサジン」と訂正する。
(6) 同書第 9 頁第 2 0 行「例えば」を「例えば」と訂正
する。
(7) 同 第 1 2 頁下から第 6 行「5 2 0 0 0 P」を「S 2 0 0 0 P」
と訂正する。
(8) 第 1 8 頁第 5 行「できる。」を「でき。」と訂正す
る。

DECLARATION

I, Tadashi YAMAMOTO, a national of Japan, c/o Yamamoto International Patent Office of 520 Sanno Urbanlife, 1-8, Sanno 2-chome, Oota-ku, Tokyo 143-0023, Japan do hereby solemnly and sincerely declare:-

- 1) THAT I am well acquainted with both Japanese Language and English language, and
- 2) THAT the attached document is a full, true and faithful partial translation into English made by me of Japanese Patent Kokai (Laid-Open) No. 61-148048

The undersigned declarant declares further that all statements made herein of his own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true; and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under section 1001, of Title 18 of the United States Code and that such willful false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

Singed this day of October 8, 2002.

T. Yamamoto

Tadashi YAMAMOTO

Partial English translation of Japanese Patent Kokai (Laid-Open)

Patent Laid-Open No. 61-148048

Laid-Open date : July 5, 1986

Request for Examination : None

Patent Application No. 59-275628

Application date : December 24, 1984

Inventor(s) : Masahiro Hosoda et al

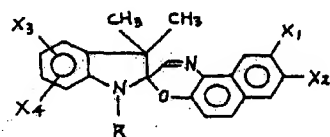
Applicant : Unitika Ltd.

Title of the invention : Photochromic laminate

(Names of individuals and corporation have been translated phonetically)

Claim :

1. A photochromic laminate integrated a photochromic layer containing a spironaphthooxadine derivative represented by the below general formula (I) in a transparent resin and transparent material layers, wherein said photochromic layer is interposed between said transparent material layers.



wherein R is a lower alkyl group ; X₁ and X₂ each are a hydrogen atom, a hydroxyl group, a lower alkoxy group or a halogen atom ; X₃ and X₄ each are a hydrogen atom, a lower alkyl group, a lower alkoxy group, a halogen atom, a nitro group or a cyan group.

2. The laminate according to claim 1, wherein said transparent material layer is an inorganic glass plate.

3. The laminate according to claim 1, wherein said transparent material layer is an organic plastic material layer.

(Page 2, right lower col. line 7 to page 3, left upper col. line 3)

Examples of organic plastic material to be preferably used include nylon 6, nylon 66, nylon 4,6, nylon 11, nylon 12, polyethyleneterephthalate, acetylcellulose, triacetylcellulose, polyethylene, polypropylene, polyvinylalcohol, polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyvinylidene fluoride, polycarbonate, polymethyl methacrylate, polyurethane, polyacrylglycolcarbonate, polyvinyl acetate, polysulfone, polyethersulfone and polystyrene and examples of materials with excellent oxygen gas barrier property include inorganic glass, nylon 6, polypropylene, polyethyleneterephthalate, polyvinylalcohol, polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyvinylidene fluoride and polyethylene trifluoride.

(Page 3, left upper col., line 13 to page 3, right upper col., line 6)

Examples of such transparent resin include acrylic polymers such as polymethyl methacrylate, styrene polymers such as polystyrene, polyester polymers such as polycarbonate, polyether polymers such as polyethylene oxide, polyamide polymers such as nylon 6, olefinic polymers such as polyethylene, cellulose polymers such as ethyl cellulose, polyvinylalcohol, polyvinyl butyral, polyvinyl acetate, polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyglycidyl methacrylate, polyurethane, poly-N-vinylcarbazole and copolymers thereof and mixture thereof.

(Page 4, lower left col., line 13 to page 4, lower right col., line 14)

Example 9, Comparative Example 9.

1.3.3-trimethylspiro [indoline-2,3'-[3H]-naphtho[2.1-b]-1.4-oxadine] was dissolved in a thermosetting type polyurethane resin (Dainihon Ink

Kagaku Kogyo, Crisvon NT-150) so as to become 20% by weight. This solution was coated on one side of nylon 6 biaxial stretched film with thickness 37μ (manufactured by Yumichika) by a bar coating process of thickness 5μ and then heat cured at 120°C for 2 minutes and then polyvinylidene chloride (Asahi Kasei, Saranlatex) was coated on the above-mentioned polyurethane resin layer so as to become a thickness of 2μ and dried to form a coating film, whereby a laminate was obtained. The laminate thus obtained was colorless and transparent and had no foam, no wrinkle, and no cloudiness and its whole represented uniform visibility. The same repeating test as in Example 1 was conducted from this laminate. The result is shown in Table 2.

For comparison, the measurement result of a laminate wherein polyvinylidene chloride layer was not laminated was shown together in Table 2. It is clear that repeating life was prolonged by laminating both sides of the photochromic layer with transparent material layers.